

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-131812

(43) 公開日 平成8年(1996)5月28日

(51) Int. Cl. ⁸	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B01J 4/00	102			
C23C 16/44		C		
C30B 25/14				

審査請求 未請求 請求項の数 6 F D (全9頁)

(21) 出願番号 特願平6-292145

(22) 出願日 平成6年(1994)11月1日

(71) 出願人 391029369

日本タイラン株式会社

東京都杉並区上荻4丁目29番15号

(72) 発明者 永 野 勝 久

東京都昭島市中神町1-22-4 パンノコ
ーポ202号

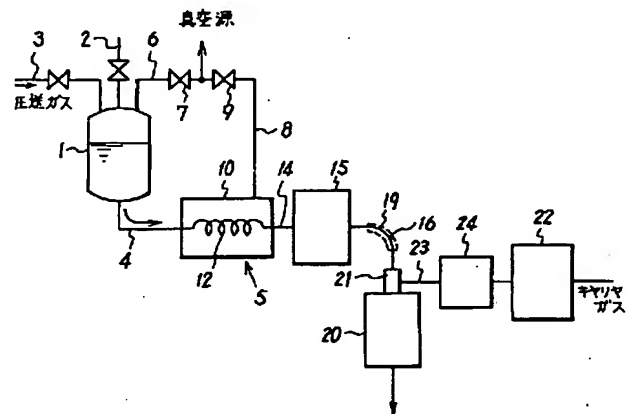
(74) 代理人 弁理士 林 宏 (外2名)

(54) 【発明の名称】 液体の気化供給装置

(57) 【要約】

【目的】 液体の気化供給装置において、液体材料の移送に加圧された不活性ガスによる圧送という手段を用いながらも、液体材料中において溶解ガスの気泡が発生するのを抑制し、安定的に圧力変動のない原料ガスを供給可能にする。

【構成】 気化供給装置では、液体材料が収容された液体材料タンク1から圧送ガスにより液体材料を送出し、該液体材料を気化させて、質量流量制御器15により制御された所要量を送出する。この液体の気化供給装置において、液体材料タンク1に、送出される液体材料に溶解しているガスを分離排出する脱気装置5を設ける。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】液体材料が収容された液体材料タンクから圧送ガスにより液体材料を送出し、質量流量制御器により制御された所要量を気化状態で送出する液体の気化供給装置において、

上記液体材料タンクに、送出される液体材料に溶解しているガスを分離排出する脱気装置を設けた、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【請求項 2】請求項 1 に記載の液体の気化供給装置において、

脱気装置を、液体材料タンクからの液体材料を通すチューブ状の透過膜とそれを囲む気密容器とによって構成し、該透過膜と気密容器との間の空間を真空源に接続した、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【請求項 3】請求項 1 または 2 に記載の液体の気化供給装置において、

液体材料タンクにバルブを介して真空源に接続する脱気管を接続することにより、直接脱気方式を適用するための脱気装置を設けた、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【請求項 4】請求項 2 または 3 に記載の液体の気化供給装置において、

脱気装置を経た流路に液体質量流量制御器を接続し、この液体質量流量制御器における原料液体の送出口に、毛細導入管を介して気化器における噴霧ノズルを接続した、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【請求項 5】請求項 2 または 3 に記載の液体の気化供給装置において、

脱気装置を経た流路に、液体材料を収容して気化させるソースタンク、該ソースタンクにおいて気化した原料ガスの送出を制御する質量流量制御器を接続した、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【請求項 6】請求項 5 に記載の液体の気化供給装置において、

ソースタンクに圧力センサを設け、この圧力センサを、その検出圧力をソースタンクの温度と平衡にある使用液体材料の蒸気圧と比較して、検出圧力が高ければ、脱気装置を流れる液体材料の流量を制御する制御弁を閉じ、検出圧力が低ければ該制御弁を開く方向に制御するコントローラに接続した、ことを特徴とする液体の気化供給装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】半導体製造プロセスにおける CVD 装置（特に減圧）等において、最近、液体を直接制御供給する技術が注目されている。本発明は、このような半導体製造プロセスにおける CVD 装置等において、必要な液体材料を安定的に気化供給するために用いる液体の気化供給装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】従来、CVD 装置等において利用するための液体の気化供給装置としては、気化した液体材料をキャリアガスで送るバブリング法、キャリアガスを用いずに気化ガスを直接コントロールするダイレクト法、液体の状態で制御した後に気化する液体コントロール法などがある。上記ダイレクト法を実施する装置は、通常、液体材料のガス状態を維持するための恒温槽内に、液体材料を気化させるためのソースタンク、気化した原料ガスを制御するための質量流量制御器（以下、MFC と略記する。）、制御された原料ガスを送出する出口部、それらを接続する配管及びバルブ等を備え、別設のリチャージタンクから室温状態の液体材料を上記ソースタンクへ移送するように構成されている。

【0003】この装置では、リチャージタンクからの液体材料の移送に液体用のポンプ等も使用できるが、液体供給の簡易性、リチャージタンクの交換性、作業の安全性等から、通常は、N₂、He、その他の加圧された不活性ガスによる圧送方法が使用されている。この不活性ガスは化学的に安定した物質であり、CVD 装置等の反応炉内に導入されても反応に大きな影響を与えることはない。しかし、その不活性ガスが液体材料中に溶解し、それが再び気化して、液体材料の気化ガスの供給を不安定化する原因になるという問題がある。

【0004】即ち、上記リチャージタンク内での加圧により液体材料に溶け込んだ不活性ガスは、ソースタンク内で加熱、気化されることによって再度ガス化するため、反応装置に供給されるガスは、原料ガスと液体材料に溶け込んでいた不活性ガスの混合ガスとなる。この混合ガスは、MFC のセンサ出力を誤らせ、所要の原料ガスを制御できなくする。また、ソースタンク内の液体材料の量、リチャージによる液体材料の圧送サイクルによって、上記混合ガスの組成が変化し、半導体製造プロセス等において安定したプロセス反応が達成できなくなる。特に、初回の反応においてはその影響が大きくなる。

【0005】また、液体の状態でその流れを液体 MFC により制御した後に気化する方式においても同様な問題があり、この場合には、液体材料から脱離した溶存ガスが、液体 MFC から噴霧ノズルに至る間の導入管の内部で気泡として現われる。これは、液体材料に掛る圧力が液体 MFC を通過すると急激に低下するためであり、この気泡のため、液体材料の導入管内での流れに空間ができ、液体材料の流れが断続的になる。特に、この導入管は細い方が液体供給が安定化するため、通常は内径φ0.5mm 程度のものが用いられ、液体が定常的に気化器へ供給されている状況では、気化器内の圧力、温度は安定しているが、上記気泡により液体流が途切れると、蒸気圧が急激に低下し、その結果、気化器内の圧力も急激に減少する。また、これらにつられて温度も変化する。このような現象が発生すると、例えば減圧プラズマ

10

20

30

40

50

CVD装置などにおいては、プラズマの状態が不安定となり、良好な反応条件が得られない。このように、気体そのものは不活性であっても、物理的現象によって反応に影響を与えることになる。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の主たる技術的課題は、液体材料の移送に上記加圧された不活性ガスによる圧送という手段を用いながらも、液体材料における溶解ガスの脱気が充分に行われ、気泡の発生をなくして、安定的に圧力変動のない原料ガスの供給を行えるようにした液体の気化供給装置を提供することにある。本発明の他の技術的課題は、上記液体材料における溶解ガスの脱気により、均一化された噴霧（粒径分布）による定常的な気化が行われ、それにより安定した気化供給が実現できるばかりでなく、気化流量も向上できるようにした液体の気化供給装置を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するための本発明の液体の気化供給装置は、基本的には、液体材料が収容された液体材料タンクから圧送ガスにより液体材料を送出し、MFCにより制御された所要量を気化状態で送出する液体の気化供給装置において、上記液体材料タンクに、送出される液体材料に溶解しているガスを分離排出する脱気装置を設けたことを特徴とするものである。上記気化供給装置においては、脱気装置を、液体材料タンクからの液体材料を通すチューブ状の透過膜とそれを囲む気密容器とによって構成し、該透過膜と気密容器との間の空間を真空源に接続することができ、さらに、液体材料タンクにバルブを介して真空源に接続する脱気管を接続することにより、直接脱気方式を適用するための脱気装置を設けたものとすることができる。

【0008】また、上記気化供給装置は、脱気装置を経た流路に液体MFCを接続し、この液体MFCにおける原料液体の送出口に、毛細導入管を介して気化器における噴霧ノズルを接続したものとすることができ、あるいは、上記脱気装置を経た流路に、液体材料を収容して気化させるソースタンク、及び該ソースタンクにおいて気化した原料ガスの送出を制御するMFCを接続したものとすることができ、その場合に、ソースタンクに圧力センサを設け、この圧力センサを、その検出圧力をソースタンクの温度と平衡にある使用液体材料の蒸気圧と比較して、検出圧力が高ければ、脱気装置を流れる液体材料の流量を制御する制御弁を閉じ、検出圧力が低ければ該制御弁を開く方向に制御するコントローラに接続することもできる。

【0009】

【作用】液体材料タンク内に導入されている液体材料を気化のために噴霧ノズルに移送するには、該液体材料タンクに圧送ガス供給管を通して加圧不活性ガスからなる圧送ガスを供給するが、この液体材料の供給に先立って

直接脱気方式による脱気を行う場合には、真空源に接続されている脱気管を通して、液体材料タンク内を減圧し、脱気する。圧送ガスにより液体材料タンクから送出された液体材料は、気密容器内の透過膜中に導入され、液体材料に溶解した圧送ガスが間接脱気方式によって分離排出され、脱気ガスは脱気管を通して吸引排出される。

【0010】脱気装置を通過した液体材料は、MFCにおいて必要な質量流量に制御されると共に、気化され、CVD装置等に送出される。液体材料に溶存している圧送ガスは、上述した脱気を行わないと、気化の過程において液体材料から溶存ガスが脱離し、液体材料の流れが断続的になるが、上記脱気装置により液体材料に対する脱気が充分に施されるため、MFCにおいては質量流量が適正に制御され、また、液体が定常的に気化され、圧力、温度が安定したガスとして送出され、減圧プラズマCVD装置などにおけるプラズマの状態を安定化させ、良好な反応条件を得ることができる。

【0011】

【実施例】図1は、本発明に係る液体の気化供給装置の第1実施例を示している。この気化供給装置は、液体チャージライン2に接続されて液体材料が収容される液体材料タンク1を備え、この液体材料タンク1からの圧送ガスによる液体材料の移送のために、該液体材料タンク1には、N₂、He、その他の加圧不活性ガスからなる圧送ガスを供給する圧送ガス供給管3が接続されている。液体材料としては、半導体製造過程で用いるTEOSの他、光ファイバー製造、合成石英製造過程ではSiCl₄、超硬材料コーティングではTiCl₄などが対象となる。また、圧送ガスにより液体材料タンク1から液体材料が送出される送出管4には、上記圧送ガスを用いるために液体材料に溶解してしまう該圧送ガスを分離排出するための脱気装置5を接続している。

【0012】一般的な脱気手段を大別すると、直接液体材料を真空引きする方式（直接脱気方式）と、透過膜を介して間接的に真空脱気する方式（間接脱気方式）があり、それぞれ一長一短を有している。即ち、前者の直接脱気方式は、効率、効果ともに大きく、液体材料の加熱や液体表面積の増大により効率を一層向上させることもできて、液体材料の脱気には有効な手段であるが、予め脱気しても、圧送ガスを用いた圧送を行うときには該圧送ガスが再溶解してしまうという問題があり、また液体材料の中の有毒または活性の激しいものに適用するのには困難性がある。

【0013】一方、後者の間接脱気方式は、例えば、PTFEのような耐食性透過膜を利用し、間接的に真空脱気する方式で、効率や効果が直接脱気方式に比してに劣っているが、液体材料の加熱や透過膜表面積の増大により効率を一層向上させることができ、液体材料の排出もなく、イン・ラインで使用できて、安全性においてすぐ

れたものである。

【0014】図1に示した気化供給装置は、これらの両脱気方式を併用可能にしたもので、図2によって以下に説明する間接脱気方式の脱気装置を備えと共に、直接脱気方式を適用するため、液体材料タンク1にはバルブ7を介して真空ポンプ等の真空源に接続する脱気管6を接続している。また、間接脱気方式による脱気ガスを吸引排出するため、その脱気装置を構成する気密容器10には、脱気ガスをバルブ9を介して上記真空源に送出するための脱気管8を接続している。

【0015】図2は、上記間接脱気方式による脱気装置5の具体的構成例を示すもので、合成樹脂製の可撓チューブや剛性材料等からなる上記気密容器10の一端部に管継手11を設けて、その外端を液体材料タンク1から液体材料が送出される送出管4に接続するとともに、容器10内において、該管継手11の内端にチューブ状の透過膜12の一端を接続し、また該チューブ状透過膜12の他端は容器10の他端部に設けた管継手13の内端に接続し、容器10の外部において、液体MFC15に接続した接続管14を該管継手13に連結している。気密容器10とチューブ状透過膜12との間の空間は、前記脱気管8に接続し、バルブ9を介して真空源に接続できるようにしている。

【0016】上記透過膜12は、液体材料に溶解している気体（主に圧送ガス）の脱気を行うためのもので、耐腐食性、気液選択性に優れた性質を兼ね備えることが必要である。そのため、液体材料、圧送ガス等の種類により、最適な透過膜を選定することが必要である。図2の脱気装置を用いた後述の実験例においては、圧送ガスとしてHeを用い、透過膜としてPTFEを用いて、その効果が十分大きいことを確かめている。

【0017】上記脱気装置においては、チューブ状の透過膜12内に管継手11側から液体材料を流し、容器10の内部における透過膜12のまわりの空間を高真空源に接続して、透過膜内外面間に一定の差圧が発生する状態に保つことにより、液体材料内に溶解している気体を排出させることができる。一般的に、液体内に溶解している気体（He）は分子サイズが小さく、液体に比べて高い運動性とPTFEに対する親和性を有するため、PTFEを選択的に透過して排出され、液体材料中より排出除去される。このような脱気装置を用いるに際し、気密容器10及び透過膜12に可撓性を持たせておくと、脱気装置全体の形状に融通性を持たせることができ、これを接続するCVD装置等の構造や取付姿勢等との関係により適切な形態を保持させることができる。

【0018】図1において、前記脱気装置5に接続した液体MFC15としては、一般に知られている構成を有するものを適宜選択して用いることができる。この液体MFC15における原料液体の送出口は、毛細導入管16を介して気化器20における噴霧ノズル21に接続し

ている。この毛細導入管16は、できるかぎり細かいものが望ましいが、通常、 $ID=\phi 0.4\sim 0.7$ mm程度のものが使用される。

【0019】また、毛細導入管16には、液体材料の表面張力、粘度を低下させるための一手段として、液体ヒータ19を被設している。この液体ヒータ19は不可欠のものではないが、気化器における噴霧ノズル21への液体材料の安定した供給を実現できるようにしたことと相まって、液体材料の表面張力、粘性を低減し、ノズルにおける霧化効率を向上して、高能率的な気化を可能にするために有効なものである。

【0020】一方、上記噴霧ノズル21に対して噴霧用のキャリアガスを供給するため、上記噴霧ノズル21は、キャリアガスMFC22を介してキャリアガス源に接続している。キャリアガスMFC22から噴霧ノズル21に至る間のガス導入管23には、キャリアガスを一定の温度に昇温させるキャリアガスヒータ24を被設しているが、このキャリアガスヒータ24も、上記液体ヒータ19と同様に不可欠のものではない。

【0021】上記噴霧ノズル21を含む気化器20としては、図3を参照して以下に説明するような構成のものを採用することができる。同図に示す気化器20は、中心部及び外周部にヒーター31、32を配設して内部の温度分布を均一化できるようにした気化器本体ケース30の周囲を断熱材33で被包し、そのケース30内の一側に上記噴霧ノズル21を配設したものである。噴霧ノズル21から本体ケース30内に噴出せしめられる混合気体は、流速が非常に速い（音速）ため、本体ケース30内における噴霧ノズル21の下流部の空間は、噴出気体が局部的に集中して本体ケース30内面等に接触しないように、更に噴霧ノズルの噴出口からの噴出角度をも考慮して、噴霧が容易に拡散できるように、その容積を十分に大きく取っている。本体ケース30内の断面積は、噴霧ノズル21の噴出口穴径の10、000倍以上が望まれる。また、上記本体ケース30内には、内部の温度分布の均一化を配慮して、複数の邪魔板34を配設している。

【0022】上記本体ケース30に設けた噴霧ノズル21は、図4に詳細に示すように、噴霧の状態を均一化するためにインジェクションタイプとし、キャリアガスの噴霧エネルギーで液体材料を微細均一噴霧可能にしたもので、上記気化器の本体ケース30内に噴出口38を開口させたノズル本体36内のノズル室37に、前記ガス導入管23を開口させると共に、該ノズル室37内に、噴孔を上記噴出口38に臨ませた液体インジェクタ39をスプリング40及び調整ナット41により位置調整可能に収容して、その噴孔に前記毛細導入管16を開口させている。

【0023】上記噴出口38の断面積は、液体インジェクタ39がスプリング40の付勢力により圧接されてい

る調整ナット 4 1 を回転させることによりその大きさを調整することができ、そのため、キャリアガス種類、流量が変わっても、最良の状態で噴出できるように噴出口 3 8 を調整し、キャリアガスの噴出エネルギーを効率よく利用することができる。

【 0 0 2 4 】 上記構成を有する噴霧ノズル 2 1 においては、液体材料が導入管 1 6 より液体インジェクタ 3 9 へ導入されて、該インジェクタの先端部の噴孔より流出し、一方、ガス導入管 2 3 より導入されたキャリアガスは、ノズル本体の噴出口 3 8 から臨界速度（音速）に近い流速で噴出し、この噴出エネルギーにより液体材料が霧化される。

【 0 0 2 5 】 液体の霧化に影響を及ぼす重要な要因としては、液体の表面張力、粘性率、密度、キャリアガスのノズル前後の圧力、液体材料とキャリアガスの流量比（気液比）などがある。安定した微細粒径の噴霧を得るためには、これらの各要因について、液体の表面張力を低減させる、液体材料の粘性率を低減させる、キャリアガスのノズル前後の差圧を増加させ、上流側圧力を上げる、気液比を高くする（液体材料の相対流量を減少させる）、などの操作が望ましく、それによりノズルの霧化効率を向上させることができる。

【 0 0 2 6 】 上述した気化器 2 0 において、噴霧ノズル 2 1 の噴出口 3 8 の断面積をキャリアガスの流出条件に合わせるために調整可能にした構造や、キャリアガス及び液体材料の導入前段にヒータ 1 9 , 2 4 を設け、液体材料の温度を上昇させるようにした構造は、上記噴霧効率の向上に極めて有効に作用するものである。

【 0 0 2 7 】 次に、上記液体気化供給装置の作用について説明する。液体チャージライン 2 を通して液体材料タンク 1 内に導入されている液体材料を気化のために噴霧ノズルに移送するには、該液体材料タンク 1 に圧送ガス供給管 3 を通して N_2 , He 等の加圧不活性ガスからなる圧送ガスを供給するが、この液体材料の供給に先立って直接脱気方式による脱気を行う場合には、バルブ 7 を介して真空源に接続されている脱気管 6 を通して、液体材料タンク 1 内を減圧し、脱気する。

【 0 0 2 8 】 圧送ガス供給管 3 からの圧送ガスにより液体材料タンク 1 の下部から送出管 4 に送出された液体材料は、気密容器 1 0 内のチューブ状透過膜 1 2 中に導入される。この透過膜 1 2 は、液体材料に溶解した圧送ガス等を間接脱気方式によって分離排出するものであり、連続的に稼働して脱気し、脱気ガスはバルブ 9 を介して真空源に接続された脱気管 8 を通して吸引排出される。なお、装置稼働中は上記直接脱気方式による脱気は動作不可能のため、使用しない。

【 0 0 2 9 】 脱気装置 5 を通過した液体材料は、液体 MFC 1 5 へ導入され、必要な質量流量に制御される。この時点では、液体材料に対する脱気は十分に施されているため、液体 MFC 1 5 内への気体（気泡、溶存気体）

の流入は最小限に管理されており、液体 MFC 1 5 は正常に動作して質量流量を適正に制御する。この液体 MFC 1 5 で制御された液体材料は、毛細導入管 1 6 を経て、気化器 2 0 の噴霧ノズル 2 1 へ導入され、毛細導入管 1 6 を通過する際に、必要に応じて設けられる液体ヒータ 1 9 により所定の温度まで加熱される。一方、キャリアガスは、キャリアガス MFC 2 2 で所要の質量流量に制御され、キャリアガスヒータ 2 4 へ導入されて一定温度に昇温し、噴霧ノズル 2 1 へ導入される。噴霧ノズル 2 1 へ導入された液体材料とキャリアガスは、該ノズルにおいて所要の噴霧状態となり、CVD 装置等へ送出される。

【 0 0 3 0 】 液体材料に溶存している圧送ガスは化学的に安定した物質であり、CVD 装置等の反応炉内に導入されても反応に大きな影響を与えることはないが、液体材料に掛る圧力が液体 MFC 1 5 を通過すると急激に低下するため、上述した脱気を行わないと液体材料から溶存ガスが脱離し、液体 MFC 1 5 から噴霧ノズル 2 1 に至る間の導入管 1 6 の内部で気泡として現われ、この気泡のため、液体材料の導入管 1 6 内での流れに空間ができ、液体材料の流れが断続的になる。しかしながら、上述した脱気装置 5 による脱気を行うことにより、液体が定常的に気化器 2 0 へ供給されると、気化器 2 0 内の圧力、温度が安定し、例えば減圧プラズマ CVD 装置などにおけるプラズマの状態を安定化させ、良好な反応条件を得ることができる。

【 0 0 3 1 】 図 5 は、本発明に係る液体気化供給装置の第 2 実施例を示している。この気化供給装置では、液体材料タンク 5 1 からの圧送ガスによる液体材料の移送のために、該液体材料タンク 5 1 に、加圧された不活性ガスからなる圧送ガスを供給する圧送ガス供給管 5 3 を接続し、更に、液体材料タンク 5 1 から液体材料が送出される送出管 5 4 には、上記圧送ガスを用いるために液体材料に溶解してしまう該圧送ガスを分離排出するための脱気装置 5 5 を接続している。この脱気装置 5 5 は、前記間接脱気方式によるもので、ステンレス製の気密容器 6 0 内に、液体材料は透過しないが溶存不活性ガスは透過する化学的に安定なチューブ状透過膜 6 2 を設け、このチューブ状の透過膜 6 2 内に液体材料タンク 5 1 から圧送される液体材料を流すように配管し、該透過膜 6 2 の外側を囲む気密容器 6 0 には、脱気ガスを真空ポンプ 5 9 により吸引排出するための脱気管 5 8 を接続している。

【 0 0 3 2 】 また、液体材料のガス状態を維持するための恒温槽 6 3 内には、上記脱気装置 5 5 からの液体材料を収容して気化させるソースタンク 6 4、該ソースタンク 6 4 において気化した原料ガスの送出を制御する MFC 6 5、該 MFC 6 5 に配管接続されて制御された原料ガスを送出する出口部 6 6、MFC 6 5 の入口側にパージガスを導入するためのパージガス導入管 6 7 等を備え

ている。

【0033】 上述の脱気装置 55 を備えない気化供給装置において、液体材料としての T E O S を N_2 からなる圧送ガスにより圧送した場合に、ソースタンク 64 内のガス圧力が 80℃ で 120 t o r r (16 k P a) であったものが、脱気装置 55 の設置により T E O S の蒸気圧が 40 t o r r (5.4 k P a) に減じることを確かめているが、これによっても、ソースタンク 64 内を T E O S のみにできることがわかる。なお、この第 2 実施例においても、第 1 実施例と同様に、液体材料タンク 51 において直接脱気方式による脱気を行うため、該液体材料タンク 51 に真空ポンプ等の真空源に接続する脱気管を設けることもできる。

【0034】 この第 2 実施例の気化供給装置においては、必要に応じて、脱気装置 55 における脱気時間の最適化を図るための手段を付設することができる。即ち、上記ソースタンク 64 に圧力センサ 70 を設け、この圧力センサ 70 の検出圧力を、コントローラ 71 においてソースタンク 64 の温度と平衡にある使用液体材料の蒸気圧と比較し、検出圧力が高ければ、脱気装置 55 からソースタンク 64 に至る流路に設けた制御弁 72 を閉じ、検出圧力が低ければ該制御弁を開く方向に制御するように構成することができる。なお、上記制御弁 72 は、脱気装置 55 の液体材料流入側に設けることもできる。

【0035】 脱気装置 55 における流量を減じて該脱気装置における液体材料の滞留時間を長くするのは、リチャージ時間増加による効率の低下を来し、また、透過膜 62 の接触面積を多くするのは、液体材料の配管内量を多くし、圧送圧力の増加やメンテナンス時の高価な液体材料のロスなどの問題を残すことになるが、上述のように制御弁 72 を制御して脱気装置 55 内の液体材料の滞留時間を長くすると、脱気時間の最適化を図ることができる。

【0036】 次に、本発明の液体気化供給装置の効果を示す実験例について説明する。実験においては、図 2 によって説明した脱気装置を使用した。気化させるために使用した液体材料は純水であるが、He 加圧による圧送のため、それに He ガスが溶解している。液体 M F C は、純水 2.1 g / M のものを使用し、キャリアガスは、 N_2 、その M F C としては、 N_2 10 s l u のものを使用した。

【0037】 図 6 は、圧送ガス (He) が溶解していると考えられる液体材料をそのまま使用した場合の測定結果を示すものである。He の溶解濃度は、任意であるため、測定日時、温度等によって多少変化はあるが、図 6 では、定期的な He 気泡の発生現象が、気化器内の急激な圧力低下によって確認される。当然、液体材料の供給料を増していくと、気泡発生頻度も増加していく。

【0038】 図 7 は、上記液体材料を約 36 h r の間直

接脱気方式により真空脱気した場合の測定結果を示すものである。同図によれば、気泡発生頻度の減少とともに、圧力低下量も減少している。このデータにより液体材料中に溶解していた He ガスが脱気され、溶解濃度が低下したことが確認される。図 8 は、図 7 の場合の条件で脱気したうえで、更に、間接脱気方式による脱気を加えた場合の測定結果を示すものである。同図によれば、気泡の発生現象はほとんどなく、安定した、圧力、温度状態が、チャンバー内で維持されていることが確認できる。これらの実験結果によれば、液体材料の脱気による液体材料供給安定性の向上は、極めて優れたものがある。

【0039】

【発明の効果】 以上に詳述した本発明の液体の気化供給装置によれば、液体材料の移送に上記加圧された不活性ガスによる圧送という手段を用いながらも、液体材料における溶解ガスの脱気が充分に行われ、気泡の発生をなくして、安定的に圧力変動のない原料ガスの供給を行えるようにした液体の気化供給装置を提供することができる。また、上記液体材料における溶解ガスの脱気により、均一化された噴霧 (粒径分布) による定常的な気化が行われ、それにより安定した気化供給が実現できるばかりでなく、気化流量も向上できるようにした液体の気化供給装置を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明に係る液体の気化供給装置の第 1 実施例を示す構成図である。

【図 2】 本発明に係る気化供給装置において用いる脱気装置の具体的構成の一例を示す断面図である。

【図 3】 本発明に係る気化供給装置において用いる気化器の具体的構成をの一例を示す断面図である。

【図 4】 上記気化器における噴霧ノズルの詳細を示す断面図である。

【図 5】 本発明に係る液体の気化供給装置の第 2 実施例を示す構成図である。

【図 6】 液体材料をそのまま使用した場合の実験結果を示す線図である。

【図 7】 上記液体材料を間直接脱気方式により真空脱気した場合の実験結果を示す線図である。

【図 8】 図 7 の場合の液体材料を更に間接脱気方式により脱気した場合の実験結果を示す線図である。

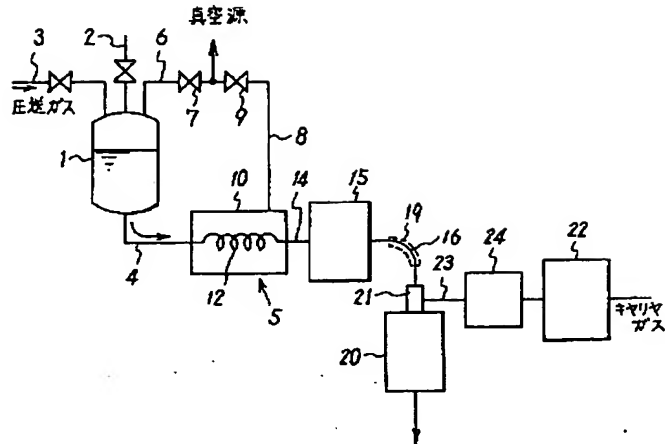
【符号の説明】

- 1, 51 液体材料タンク
- 5, 55 脱気装置
- 7, 9 バルブ
- 6, 8, 58 脱気管
- 10, 60 気密容器
- 12, 62 透過膜
- 15 液体質量流量制御器 (M F C)
- 16 毛細導入管

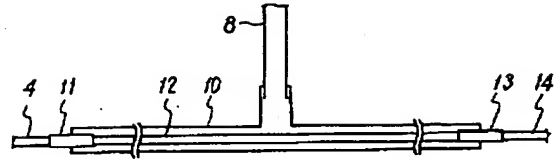
20 気化器
21 噴霧ノズル
64 ソースタンク
65 MFC

70 圧力センサ
71 コントローラ
72 制御弁

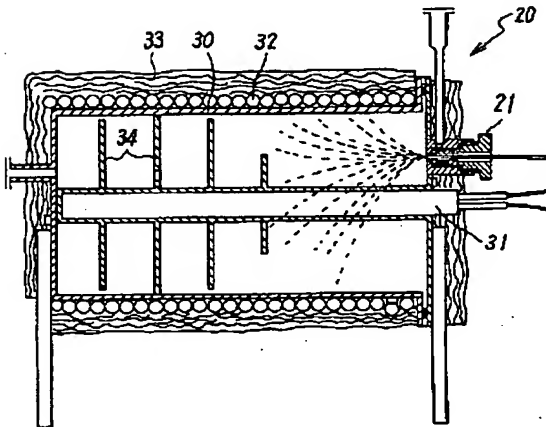
【図1】



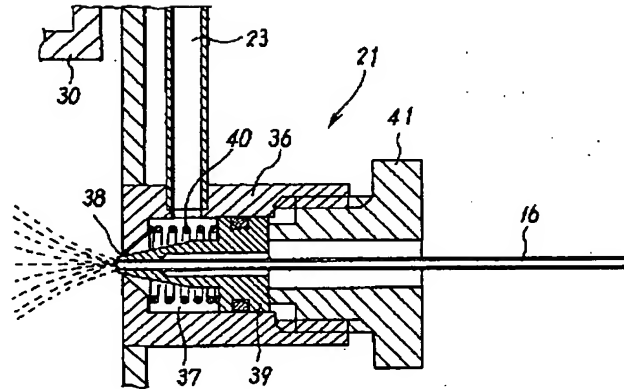
【図2】



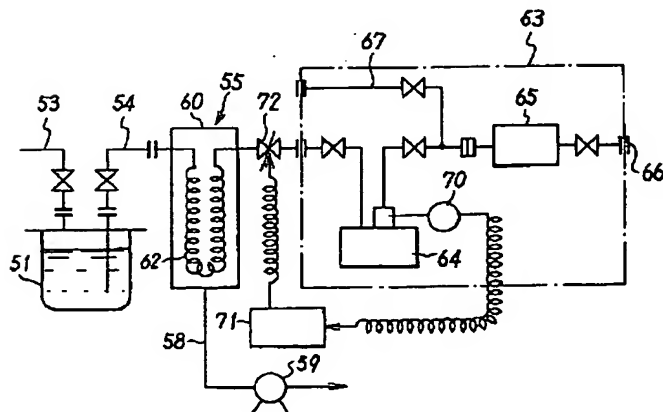
【図3】



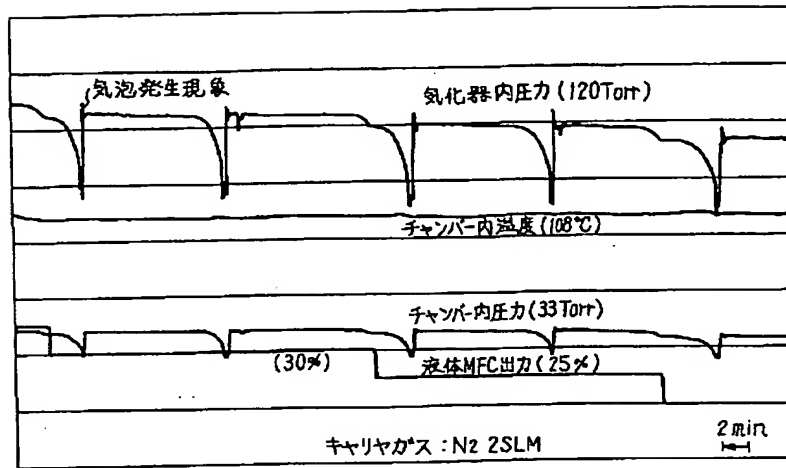
【図4】



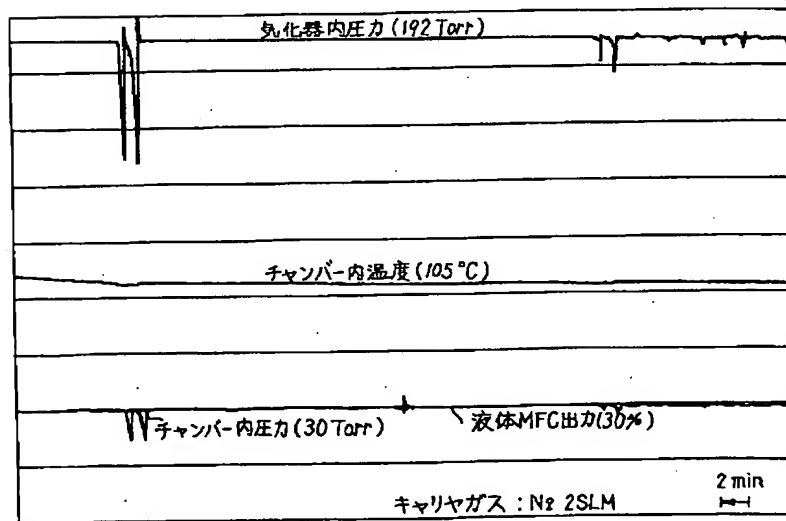
【図5】



【図 6】



【図 7】



【図 8】

気化器内圧力 (192 Torr)	
チャンバー内温度 (106 °C)	
液体MFC出力 (30%)	
チャンバー内圧力 (30 Torr)	
キャリアガス : N ₂ 2SLM	
2 min ←	